

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-254103

(P2001-254103A)

(43) 公開日 平成13年9月18日 (2001.9.18)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	キーワード(参考)		
B 2 2 F	1/00	B 2 2 F	1/00	Z	4 K 0 1 7
	1/02		1/02	D	4 K 0 1 8
	9/10		9/10		

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-68490(P2000-68490)

(22) 出願日 平成12年3月13日 (2000.3.13)

(71) 出願人 596023784

三栄化成株式会社

東京都中央区日本橋三丁目1番8号

(72) 発明者 岡根 重信

東京都葛飾区東立石2-19-9

(74) 代理人 100067057

弁理士 青麻 昌二

Fターム(参考) 4K017 AA06 BA01 BA03 BA05 BA06

BA10 BB17 CA07 DA04 DA09

ED02 FA03 FA08

4K018 BA02 BA04 BA08 BA10 BA18

BB04 BB06 BC15 BD01 BD10

(54) 【発明の名称】 ナノコンポジット構造を有する金属粒子及び自己組織化によるその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 ナノコンポジット構造を有する金属粒子及びその製造方法である。

【解決手段】 本発明の金属粒子は、金属の微小粒子の集合体であって、個々の微小粒子が金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層又は点在物、或いは空隙により相互に隔離されているナノコンポジット構造を有するものである。このようなナノコンポジット構造を有する金属粒子は、アルゴン、酸素、窒素、水素、ヘリウム及び金属蒸気の中の少なくとも1種類よりなるガス雰囲気中で、熔融金属を高速回転する皿形ディスク上に供給し、遠心力を作用させて小滴として飛散させ、ガス雰囲気中で急冷して自己組織化させることにより得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属の微小粒子の集合体であって、個々の微小粒子が金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層又は点在物、或いは空隙により相互に隔離されているナノコンボジット構造を有することを特徴とする金属粒子。

【請求項2】 平均粒径 $200\mu\text{m}$ 以下である請求項1に記載の金属粒子。

【請求項3】 アルゴン、酸素、窒素、水素、ヘリウム及び金属蒸気の内の少なくとも1種類よりなるガス雰囲気中で、溶融金属を高速回転する皿形ディスク上に供給し、遠心力を作用させて小滴として飛散させ、ガス雰囲気中で急冷して自己組織化させることを特徴とするナノコンボジット構造を有する金属粒子の製造方法。

【請求項4】 皿形ディスクの回転数を毎分3万回転以上とする請求項3に記載のナノコンボジット構造を有する金属粒子の製造方法。

【請求項5】 ガス雰囲気中が、微量の酸素を含む不活性ガスである請求項3に記載のナノコンボジット構造を有する金属粒子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、ナノコンボジット構造を有する金属粒子及び自己組織化によるその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】磁石、触媒、電極材、電池材、保冷材、耐火材、焼結金属などの原料として、各種の金属、金属酸化物、金属窒化物、金属珪化物、これらの混合物などの粉末が使用されているが、従来は主としてその組成、形状及び粒度が問題とされてきた。しかし最近、原料粉末の顕微鏡的微小構造、ことに2種類以上の構成要素が複合された微小構造（ナノコンボジット構造）が、これら粉末を用いて製造された材料の使用特性に大きな影響を与えることが報告され、多くの分野で研究が進められている。しかし従来粉末を製造するために使用されている機械的粉碎ではナノコンボジット構造を得ることが困難である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、ナノコンボジット構造を有する金属粒子及び自己組織化によるその製造方法を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明に係る金属粒子は、金属の微小粒子の集合体であって、個々の微小粒子が金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層又は点在物、或いは空隙により相互に隔離されているナノコンボジット構造を有することを特徴とする。また、本発明に係るナノコンボジット構造を有する金属粒子の製造方法は、アルゴン、酸素、窒素、水素、ヘリウム及び金属蒸

気の中の少なくとも1種類よりなるガス雰囲気中で、溶融金属を高速回転する皿形ディスク上に供給し、遠心力を作用させて小滴として飛散させ、ガス雰囲気中で急冷して自己組織化させることを特徴とする。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明の実施に際して使用する遠心式粒状化装置の構造例を図1に示す。粒状化室1は上部が円筒状、下部がコーン状になっており、上部に蓋2を有する。蓋2の中心部には垂直にノズル3が挿入され、ノズル3の直下には皿形回転ディスク4が設けられている。符号5は皿形回転ディスク4を上下に移動可能に支持する機構である。また粒状化室1のコーン部分の下端には生成した粒子の排出管6が接続されている。ノズル3の上部は粒状化する金属を溶融する電気炉（高周波炉）7に接続されている。混合ガスタンク8で所定の成分に調整された雰囲気ガスは配管9及び配管10により粒状化室1内部及び電気炉7上部にそれぞれ供給される。粒状化室1内の圧力は弁11及び排気装置12、電気炉7内の圧力は弁13及び排気装置14によりそれぞれ制御される。電気炉7の内圧を大気圧より若干高め、粒状化室1の内圧を大気圧より若干低めに維持すれば、電気炉7で溶融した金属は差圧によりノズル3から皿形回転ディスク4上に供給される。供給された金属は皿形回転ディスク4による遠心力の作用で微細な液滴状になって飛散し、冷却されて固体粒子になる。生成した固体粒子は排出管6から自動フィルター15に供給され分別される。符号16は微粒子回収装置である。

【0006】高速回転体が円盤状又は円錐状の場合は、溶融金属が回転体のどの位置に供給されるかによって溶融金属にかかる遠心力が大きく異なるので、粒の揃った球状粉体を得にくい。高速回転する皿形ディスク上に供給した場合は、その皿形の周縁位置における均一な遠心力を受け粒の揃った小滴に分散して飛散する。飛散した小滴は雰囲気ガス中で急速に冷却し、固化した小粒となって落下し、回収される。

【0007】本発明者らは、上記のような装置を用いて溶融金属を粉末化する研究を行った結果、溶融金属は急速冷却固化中に自己組織化され、個々の微小粒子が金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層、点在物、或いは空隙により相互に隔離されているナノコンボジット構造を有する金属粒子になること、及び原料金属の組成及び雰囲気ガスの種類によって、個々の微小粒子は、金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層、点在物、或いは空隙のいずれかにより相互に隔離されたものとなることを見いだした。なお自己組織化とは、均一相である溶融金属が、その分散、急速冷却固化過程で、自動的にナノコンボジット構造を形成することを言う。

【0008】皿形ディスクの回転数が高くなるほど、得られた粒子の径は小さくなる。内径 35mm 、深さ 5mm の皿形ディスクを用いた場合、平均粒径 $200\mu\text{m}$ 以

下の粒子を得るためには毎分30,000回転以上とすることが望ましい。

【0009】粒状化室に供給する雰囲気ガスの温度は室温でよいが、長時間連続操作する場合には、溶融金属小滴の急冷効果を維持するため、粒状化室内温度が300℃以下になるように通気量を制御することが望ましい。

【0010】以下実施例により本発明の構成及び効果を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。

【0011】

	雰囲気	回転数	粒形・粒度分布	平均粒径
テスト1	酸素500ppm含有Ar	5000rpm	球状・広い	500 μ m
テスト2	酸素500ppm含有Ar	10000rpm	球状・広い	300 μ m
テスト3	酸素500ppm含有Ar	20000rpm	球状・広い	250 μ m
テスト4	酸素500ppm含有Ar	30000rpm	球状・やや広い	200 μ m
テスト5	酸素500ppm含有Ar	40000rpm	球状・狭い	160 μ m
テスト6	酸素500ppm含有Ar	50000rpm	球状・狭い	80 μ m
テスト7	酸素500ppm含有Ar	60000rpm	球状・狭い	30 μ m
テスト8	酸素500ppm含有Ar	65000rpm	球状・狭い	10 μ m

【0013】実施例1のテスト7により得られた粒子（粒径30 μ m）の電子顕微鏡写真を図2に、更に倍率を高めた電子顕微鏡写真を図3に示す。図2によれば、得られた粒子は真球状であり、且つ微細な網状構造を有することが認められる。高倍率の図3によれば、図2に示された粒子は微小粒子（ナノ粒子）の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）は希土類含有鉄合金、隔離層（黒筋部分）は希土類酸化物であることが確認された。

【0014】

【実施例2】酸素2,500ppmを含有するアルゴンガス雰囲気中で行った以外は実施例1のテスト7と同様な条件で粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図4に、更に倍率を高めた電子顕微鏡写真を図5に示す。図4によれば、得られた粒子はなすび状（雨滴状）であったが、高倍率の図5によれば、図4に示された粒子はやはり微小粒子の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）は希土類含有鉄合金、隔離層（黒筋部分）は希土類酸化物であることが確認された。

【0015】

【実施例3】酸素3,500ppmを含有するアルゴンガス雰囲気中で行った以外は実施例1のテスト7と同様な条件で粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図6に、更に倍率を高めた電子顕微鏡写真を図7に示す。図6によれば、得られた粒子は針状であったが、高倍率の図7によれば、図6に示された粒子はやはり微小

【実施例1】図1に示した装置を使用し、酸素500ppmを含有するアルゴンガス雰囲気中で、高速回転する内径35mm、深さ5mmの皿形ディスク上に希土類含有鉄合金（R-Fe-B；Rは希土類金属）溶融物を供給して遠心力を作用させ小滴として飛散させ、急冷することにより粒子を得た。回転数と粒径との関係を表1に示す。

【0012】

【表1】

粒子の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）は希土類含有鉄合金、隔離層（黒筋部分）は希土類酸化物であることが確認された。

【0016】酸素500ppmを含有するアルゴンガス雰囲気中では真球状（実施例1）の粒子が得られたのに、酸素濃度を高めるにつれてなすび状（実施例2）、更に針状（実施例3）と、より長い粒子になったのは、高酸素濃度では小滴中の金属成分と酸素との反応がより活発になり、溶融金属小滴がより大きい熱量を保有するようになることと関係があると思われる。

【0017】

【実施例4】図1に示した装置を使用し、窒素20%を含有するアルゴンガス雰囲気中で、毎分40,000回転する皿形ディスク上に亜鉛溶融物を供給して遠心力を作用させ小滴として飛散させ、急冷することにより粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図8に示す。得られた粒子は球状で、表面に多くのひび割れが認められる。即ち、図8に示された粒子は微小粒子の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）は亜鉛、隔離層（ひび割れ部分）は亜鉛酸化物であることが確認された。

【0018】

【実施例5】図1に示した装置を使用し、水素1%を含有するアルゴンガス雰囲気中で、毎分40,000回転する皿形ディスク上にアルミニウム溶融物を供給して遠心力を作用させ小滴として飛散させ、急冷することにより粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図9に

示す。得られた粒子は球状で、表面に多くのひび割れが認められた。即ち、図9に示された粒子は微小粒子の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）はアルミニウム、隔離層（ひび割れ部分）は水素化アルミニウムであることが確認された。

【0019】

【実施例6】図1に示した装置を使用し、水素1%を含むアルゴンガス雰囲気中で、毎分40,000回転する皿形ディスク上に銅・アルミニウム合金（50:50）溶融物を供給して遠心力を作用させ小滴として飛散させ、急冷することにより粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図10に、更に倍率を高めた電子顕微鏡写真を図11に示す。図10に示された粒子は微小粒子の集合体で、個々の微小粒子が相互に隔離された構造であることがわかる。別の試験により、個々の微小粒子（主相）は銅・アルミニウム合金、隔離層（黒筋部分）は空隙であることが確認された。

【0020】

【実施例7】図1に示した装置を使用し、亜鉛蒸気存在させたアルゴンガス雰囲気中で、毎分40,000回転する皿形ディスク上にニッケル・アルミニウム合金溶融物を供給して遠心力を作用させ小滴として飛散させ、急冷することにより粒子を得た。得られた粒子の電子顕微鏡写真を図12に示す。白色の部分（主相）がニッケル・アルミニウム合金で、灰色の部分（亜鉛）である。脱亜鉛の二次処理をすることによりナノコンポジット構造を有する金属粒子が得られる。

【0021】以上幾つかの実施例に示したように、溶融する金属の種類や組成、雰囲気ガスの種類や組成、皿形ディスクの回転数などを変えて組み合わせることにより、さまざまなナノコンポジット構造を有する金属粒子が得られる。

【0022】

【発明の効果】金属の微小粒子の集合体であって、個々の微小粒子が金属酸化物、金属窒化物又は金属珪化物の層又は点在物、或いは空隙により相互に隔離されているナノコンポジット構造を有する金属粒子が得られ、この粒子は磁石、触媒、電極材、電池材、保冷材、耐火材、焼結金属などの原料として、広い用途が期待できる。具体例として、実施例1, 2, 3で示したナノコンポジット構造を有する希土類含有鉄合金（R-Fe-B）粒子は、極めて優れた磁気特性を有する焼結磁石又はボンド

磁石の原料になる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明方法を実施する装置の概念図である。

【図2】実施例1により得られた希土類含有鉄合金粒子の電子顕微鏡写真である。

【図3】実施例1により得られた希土類含有鉄合金粒子の更に高倍率の電子顕微鏡写真である。

【図4】実施例2により得られた希土類含有鉄合金粒子の電子顕微鏡写真である。

【図5】実施例2により得られた希土類含有鉄合金粒子の更に高倍率の電子顕微鏡写真である。

【図6】実施例3により得られた希土類含有鉄合金粒子の電子顕微鏡写真である。

【図7】実施例3により得られた希土類含有鉄合金粒子の更に高倍率の電子顕微鏡写真である。

【図8】実施例4により得られた粒子の電子顕微鏡写真である。

【図9】実施例5により得られた粒子の電子顕微鏡写真である。

【図10】実施例6により得られた粒子の電子顕微鏡写真である。

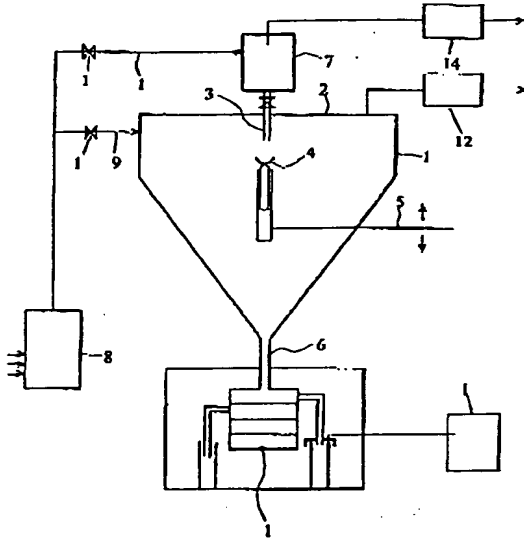
【図11】実施例6により得られた粒子の更に高倍率の電子顕微鏡写真である。

【図12】実施例7により得られた粒子の電子顕微鏡写真である。

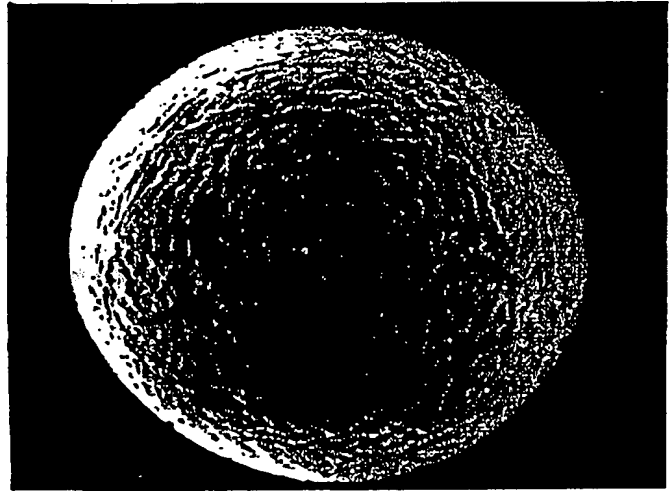
【符号の説明】

- 1 粒状化室
- 2 蓋
- 3 ノズル
- 4 回転ディスク
- 5 回転ディスク支持機構
- 6 粒子排出管
- 7 電気炉
- 8 混合ガスタンク
- 9 配管
- 10 配管
- 11 弁
- 12 排気装置
- 13 弁
- 14 排気装置
- 15 自動フィルター
- 16 微粒子回収装置

【図1】

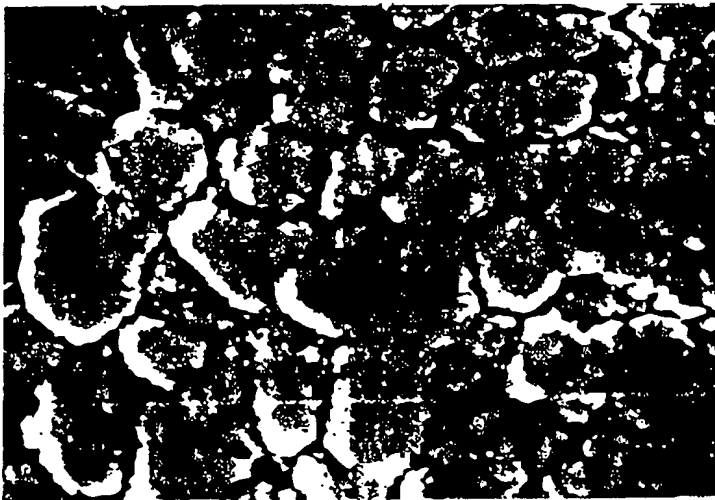


【図2】



BEST AVAILABLE COPY

【図3】



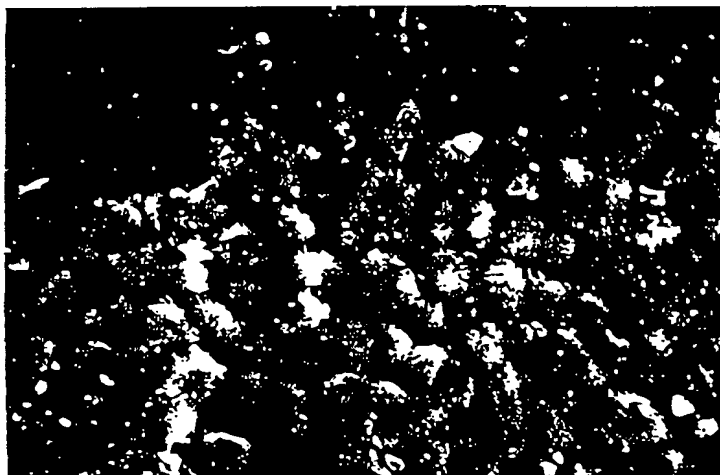
BEST AVAILABLE COPY

!(6) 001-254103 (P2001-2548

【図4】



【図5】



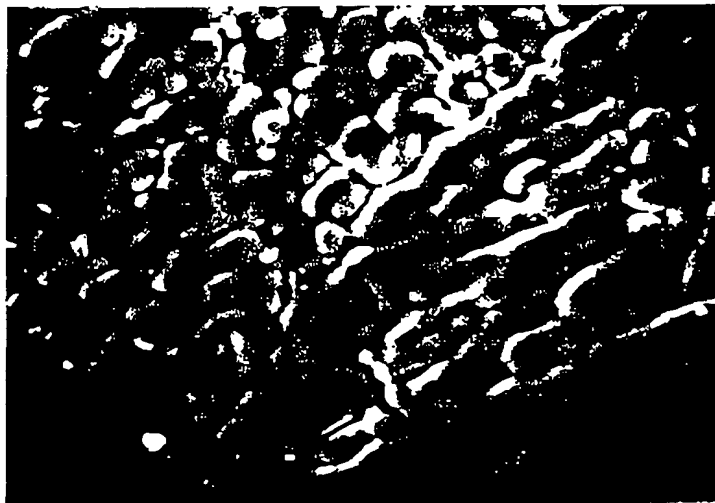
BEST AVAILABLE COPY

(7) 001-254103 (P2001-25)48

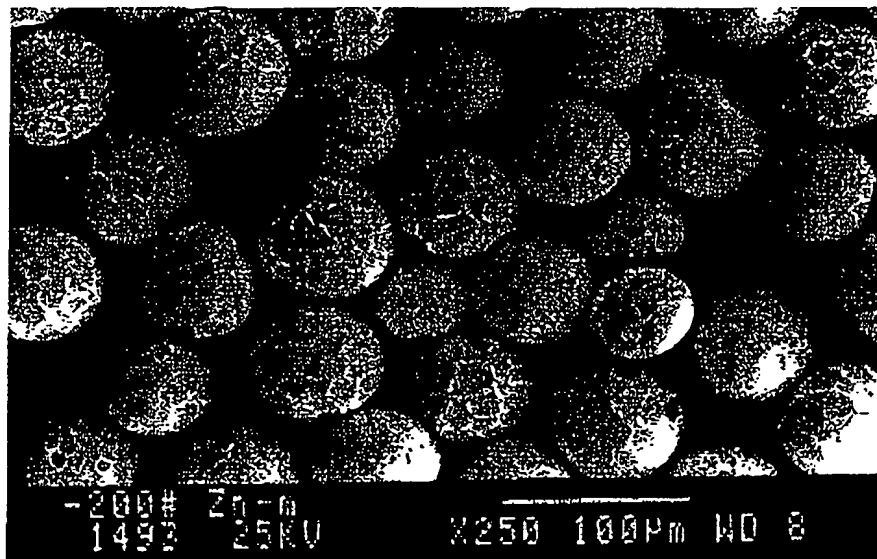
【图6】



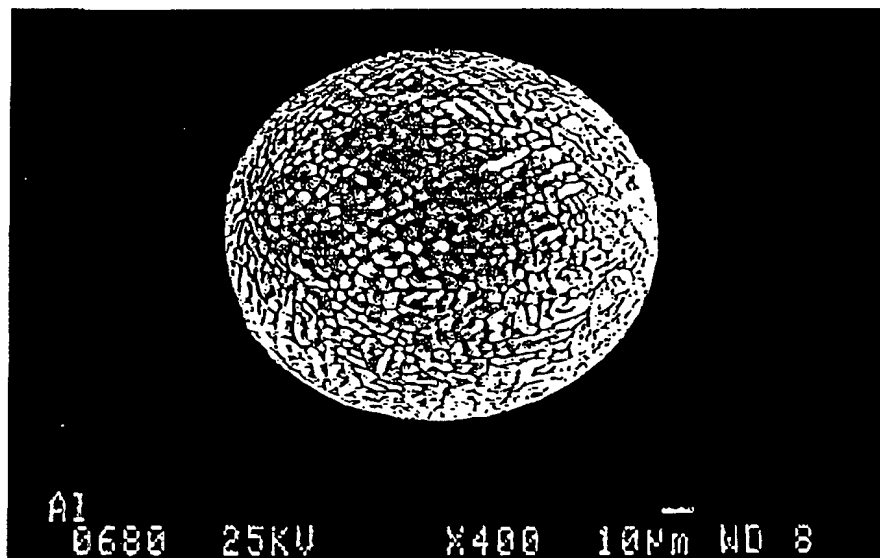
【图7】



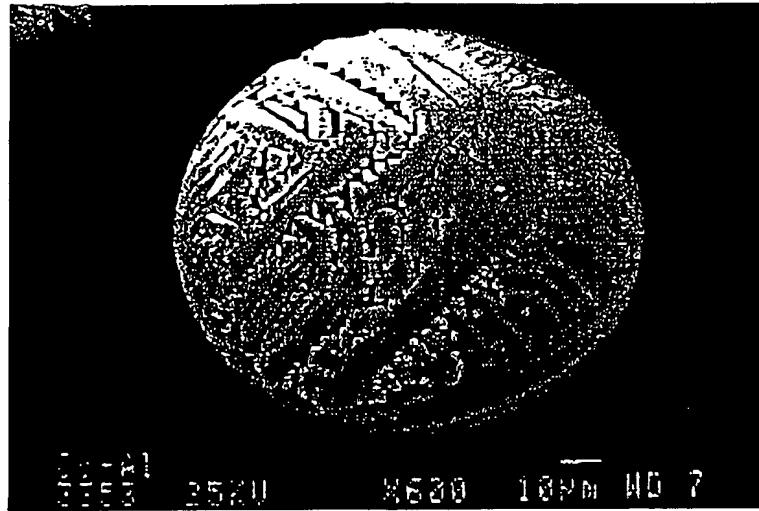
【图8】



【图9】

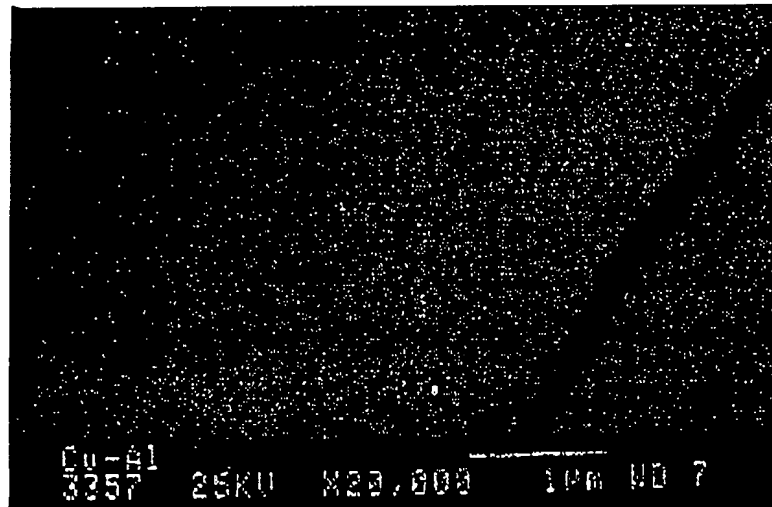


【图10】



BEST AVAILABLE COPY

【图11】



【図12】



BEST AVAILABLE COPY